

JAERI-M

7 6 4 2

放射性廃棄物の陸地保管・処分に関する安全性研究
(砂層における ^{60}Co および ^{137}Cs の分布と移動)

1978年4月

武 部 慎 一・松 鶴 秀 夫・和 達 嘉 樹

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

放射性廃棄物の陸地保管・処分に關する安全性研究
(砂層における ^{60}Co および ^{137}Cs の分布と移動)

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
武部慎一・松鶴秀夫・和達嘉樹

(1978年3月24日受理)

通気層中の放射性核種の移動を評価するため、 ^{60}Co および ^{137}Cs の砂層中分布および移動速度を種々の実験条件下で調べた。すなわち、カラム内の通気状態砂層に ^{60}Co および ^{137}Cs を含む水溶液を流下させた。

この結果、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs の双方の分配係数は、酸性において大きい、中性およびアルカリ性においては小さい。分布比は、一般に流下させた ^{60}Co 、 ^{137}Cs の殆どが溶液の酸性度にほぼ無関係に砂層表面に付くことを示している。井上らによって提案された式¹⁾により計算したところ、 ^{60}Co および ^{137}Cs の移動速度は、中性およびアルカリ性において大きい、水の移動速度に比べると小さな値である。

Study on Safety Ground Storage and Disposal of Radioactive Wastes
— Distribution and Migration of ^{60}Co and ^{137}Cs in a Sand Layer —

Shinichi TAKEBE, Hideo MATSUZURU and Yoshiki WADACHI
Division of Environmental Safety Research,
Reactor Safety Research Center,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received March 24, 1978)

In evaluation of radionuclides migration through aerated zone, distribution ratio and migration rate of ^{60}Co and ^{137}Cs in a sand layer were examined under different conditions. Radioactive aqueous solutions ^{60}Co and ^{137}Cs were allowed to flow down to an aerated sand layer in a column.

The distribution coefficient of both ^{60}Co and ^{137}Cs is large in acidic, and small in neutral and alkaline condition. Distribution ratios show ^{60}Co and ^{137}Cs deposit mostly at surface of the sand layer independent of the solution acidity. By the equation proposed by Inoue et al., migration rate of ^{60}Co and ^{137}Cs is large in both neutral and alkaline condition, but small compared with that of water.

Keywords:

Ground storage, Ground disposal, Radioactive wastes, Sand layer,
Distribution coefficient, Distribution ratio, ^{60}Co , ^{137}Cs ,
Migration rate, Aerated zone.

目 次

1. 緒 言.....	1
2. 実験方法	2
2.1 実験に用いた砂および地層モデル.....	2
2.2 放射性水溶液流下実験.....	2
3. 実験結果と考察.....	4
4. 結 言.....	6
参考文献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1. Sand and sand layer model used in the experiment	2
2.2. Flow-down experiments of radioactive aqueous solution	2
3. Results and discussion	4
4. Concluding remarks	6
References	7

Content of tables

Table

1. Distribution of particle size of sand.....	8
2. Migration rate of radionuclides in the sand layer.....	9

Content of figures

Fig.

1. A scheme of column.....	10
2. Water retention ratio and porosity of the sand layer.....	11
3. Dependence of effluent ratio on pH and effluent volume.....	12
4. Dependence of distribution coefficient on pH and effluent volume.....	13
5. Distribution ratio of ^{60}Co and ^{137}Cs in the sand layer.....	14
6. Porosity of stratum and degree of saturation in the sand layer.....	15

1. 緒 言

放射性廃棄物の陸地保管・処分の安全性を評価するためには、放射性廃棄物から浸出する放射性核種の地中挙動について十分な知識が必要となる。このため基礎的研究として、初めにバッチ法およびカラム法により、放射性核種の土壌への吸着に与える種々の影響を砂について調べた。

バッチ法では、各放射性核種の砂への吸着率が極大値を示す pH およびその際の分配係数(Kd)ならびに吸着におよぼす共存陽イオンの影響を調べた。それぞれの結果を次に示す。

$$^{137}\text{Cs} : \text{pH}7, \text{Kd} \simeq 680, \text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+}$$

$$^{60}\text{Co} : \text{pH}6, \text{Kd} \simeq 300, \text{Ca}^{2+} \gtrsim \text{Mg}^{2+} \gg \text{Na}^+$$

カラム法では、内径 20 mm ϕ のパイレックス製カラムを使用し、水による汚染砂層からの放射性核種の溶出を調べた。 $^{137}\text{Cs}^+$ は砂層に対する吸着性が大きいため、中性およびアルカリ性汚染では小さな溶出比を示す。一方、 $^{60}\text{Co}^{2+}$ の中性汚染では、アルカリ性汚染の場合の溶出比より小さな値を示した。

以上の結果に基づき、本報では放射性核種の地中移動状況に関する実験として、砂を充填した小規模地層モデル（内径 50 mm ϕ 、多段 2 重構造アクリル製カラムを使用、Fig. 1 参照）を用い、通気層状態の砂層に放射性水溶液を流下させた場合、放射性核種（ ^{60}Co および ^{137}Cs ）の分配係数に与える pH の影響ならびに放射性核種の砂層中分布比および移動速度についてそれぞれ検討するものである。

2. 実験方法

2.1 実験に用いた砂および地層モデル

実験に用いた砂は、東海研究所敷地内（海岸より約 500 m、地下約 3 m）より採取した海岸砂で、水道水で十分洗浄し泥土を取除き、さらに JIS 標準篩で 1680 μ 以上の粗砂を取除いた後、イオン交換水で再度洗浄した。砂のモード径は 350 μ 、密度は 2.63 g/cm³、粒度分布は Table 1 に示すごとくである。

地層モデルはアクリル製の多段 2 重構造のカラムを用い、充填砂層は 5 cm ϕ \times 24 cm である。（Fig. 1 参照）

カラムに洗浄、乾燥済の砂（744 g）を空隙率約 40% で充填し（1956 cm³）、十分イオン交換水を流下させた後、1 昼夜放置してから通気層状態の地層モデルとして実験に供した。この際のカラム内砂層の保水率および空気率は、Fig. 2 に示す通りであった。

2.2 放射性水溶液流下実験

塩酸および水酸化ナトリウムで pH を調整した放射性水溶液（⁶⁰Co Cl₂ および ¹³⁷Cs Cl、おのおの約 1.0×10^{-3} μ Ci/ml）を、マイクロチューブポンプにより一定の流速*で砂層に流下させた。流出液を連続的に採取し、その放射能濃度を測定し、(1) 式に従って各流下液量ごとに核種の流出比 (E) を求め、次に得られた流出比から (2) 式に従って各流下液量ごとの核種の見掛けの分配係数 (Kd') を求めた。

$$E = \frac{A_f}{A_i} \quad (1)$$

ただし A_i : 砂層を流下する前の放射能濃度 (μ Ci/ml)

A_f : 砂層を流下した後の放射能濃度 (μ Ci/ml)

$$Kd' = \frac{V}{M} \cdot \frac{A_i - A_f}{A_f} = \frac{V}{M} \left(\frac{1}{E} - 1 \right) \quad (2)$$

ただし V : 放射性水溶液通水量 (ml)

M : 砂層の重量 (g)

* 流速は 2 cm ϕ カラムで線流速 0.2 cm/min および 2 cm/min の範囲で放射性核種の流出比に差が認められなかったことから、線流速 0.69 cm/min の条件で実験を行なった。

放射性水溶液を流下させた後、1時間放置してから砂層を表面から所定の厚さごとに採取し、含まれる放射エネルギーを測定し、核種の砂層中分布を(3)式による分配比(R)で表わした。さらに、井上ら¹⁾によって提出されている通気層中放射性核種の移動に関する式により、 ^{60}Co および ^{137}Cs の砂層中移動速度を求めた。

以上の実験の放射能測定は、TMC製400チャンネル γ 線波高分析器(5" ϕ \times 4" NaI(Tl))により行い、 ^{60}Co と ^{137}Cs の定量測定は、いわゆるバックグラウンド差引き法により行なった。

$$R = \frac{A_j}{A_t} \quad (3)$$

ただし A_t : 砂層に流下した全放射エネルギー (μCi)

A_j : 各砂層部分の放射エネルギー (μCi)

3. 実験結果と考察

^{60}Co および ^{137}Cs について、流下流量および酸性度(pH)と核種の流出比(E)との関係を Fig. 3 に示す。 ^{60}Co , ^{137}Cs とも流出比は流下液量の増加に従って増大するが、その増加傾向は次第に小さくなる。酸性度の影響については、 ^{137}Cs は酸性で非常に良く砂層に吸着され、流出液中の放射能濃度は検出限界以下^{*}となり、測定出来なかった。しかし、中性およびアルカリ性では、充填砂層と等量の流下液量である 2,000 ml 流下での流出比は、それぞれ、 1.05×10^{-3} と 2.5×10^{-4} を示した。一方、 ^{60}Co の場合も酸性で砂層に良く吸着され流出比は小さく、流下液量 2,000 ml で 2.3×10^{-5} であるが、中性およびアルカリ性では大きく、各各 1.0×10^{-1} と 8.0×10^{-2} を示した。このような酸性との差異は、 $^{60}\text{Co}^{2+}$ が中性、アルカリ性で加水分解され非イオン状の $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ を形成し、砂層に吸着され難くなるためと考えられる。

^{60}Co および ^{137}Cs について、流下液量および酸性度(pH)と核種の見掛けの分配係数(K_d')との関係を Fig. 4 に示す。 ^{60}Co , ^{137}Cs とも分配係数は流下液量の増加に従って減少するが、その減少傾向は次第に小さくなり、一定値に近づく。(2)式から明らかなように、流出比が大きい場合、分配係数は小さくなる。それ故、酸性度(pH)の影響は ^{60}Co , ^{137}Cs とも酸性で分配係数は大きく、中性、アルカリ性で小さい。充填砂層と等量の流下液量 2,000 ml でのそれらの値は以下に示すとおりであった。

$$^{60}\text{Co} : 2.1 \times 10^3 (\text{pH}7), 2.8 \times 10^3 (\text{pH}12)$$

$$^{137}\text{Cs} : 1.5 \times 10^3 (\text{pH}7), 1.8 \times 10^3 (\text{pH}12)$$

放射性水溶液を通気層状態の砂層に 0.67 cm/min の流下速度で 2,000 ml 流下させた後、測定した放射性核種の砂層中分布比を Fig. 5 に示す。この図から明らかなように、 ^{137}Cs は中性およびアルカリ性でその大部分が砂層表面付近に吸着し、砂層深部に行くに従って分布比は指数関数的に急激に減少する。この場合、砂層の深さ 10~12 cm 以上で分布比の減少はおだやかとなり、 10^{-4} 以下の小さな値を示す。一方、 ^{60}Co も中性およびアルカリ性で砂層表面付近に多く吸着し、砂層深部に行くに従って分布比は減少するが、 ^{137}Cs に比べてその減少の割合ははるかに小さく、砂層の深さ 16~18 cm 以上で分布比が 10^{-2} 以下となる。結局、 ^{60}Co が中性およびアルカリ性で砂層中をかなり移動するためであって、前述したように加水分解により形成された非イオン状の $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ が、砂層に吸着されずに水と共に移動し易いことによると考えられる。

酸性における砂層中分布は、中性およびアルカリ性の場合と異なり、砂層表面付近で吸着が多いのは同様であるが、 ^{60}Co , ^{137}Cs とも砂層中途の深さ 13~14 cm のところに分布比の 1 つの極大値を生ずる。このような極大値が現われるのは、共存する H^+ のために、



* 溶液 1 ℓ の測定で検出限界約 $1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ である。

の反応により核種イオン M^{n+} の砂層への吸着、脱着が繰り返し行われるため、イオン交換体への金属イオンの吸着などで一般に見られる現象である。^{3), 4)}

井上らによって提出されている通気層中放射性核種の移動に関する式は、帯水層での移動理論⁵⁾が通気層にも修正適用できるとしたもので、次の(4)式¹⁾で示される。

$$K_{f.a} = \frac{v_a}{v_A} = 1 + \frac{1-f}{f \cdot s} \cdot \rho \cdot K_d \quad (4)$$

- $K_{f.a}$: 通気層での時間変換係数
 v_a : 通気層中の水の浸透速度
 v_A : 通気層中の放射性核種の移動速度
 f : 地層の空隙率
 ρ : 地層構成土壌の密度 (g/cm^3)
 s : 地層間隙の飽和度
 K_d : 放射性核種の分配係数 (ml/g)

ここで、実験に用いたカラム内砂層の空隙率(A)と間隙の飽和度(S)を求めた結果を Fig. 6 に示す。

放射性水溶液を砂層に流下させた場合の放射性核種の砂層中移動速度を、(4)式により求めてみる。この際、核種の分配係数には 2,000 ml 流下させた場合の見掛けの分配係数 K_d' を、砂層の空隙率 f および飽和度 S には Fig. 2, Fig. 6 より砂層全体における平均値を、そして水の砂層中浸透速度 v_a には流下速度を用いる。すなわち、 $f = 0.374$, $S = 0.5662$ を用いた。計算結果を Table 2 に示す。

Table 2 より、 ^{60}Co , ^{137}Cs とも水の浸透速度、すなわち移動速度に比べそれらの移動速度は小さい。とくに酸性では非常に小さい。一方、中性およびアルカリ性では、酸性に比べて ^{60}Co , ^{137}Cs とも移動速度は大きい。それでも水の移動速度に比べて ^{60}Co で約 $1/100$, ^{137}Cs で約 $1/10,000$ に過ぎなかった。

以上これらの結果は、保管アスファルト固化体(中性)或はセメント固化体(アルカリ性)から浸出した放射性核種によって汚染した水が通気層状態の砂層を流下する場合、陽イオン状にある核種の移動速度は非常に小さいのに比べ、加水分解し水酸化物を形成する核種の移動速度は大きいことが推定される。

4. 結 言

- (1) 酸性では ^{60}Co , ^{137}Cs ともに砂層に良く吸着され流出比は小さいが、中性およびアルカリ性では流出比は増加し、特に、 ^{60}Co の場合、加水分解により非イオン状 $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ を形成するため流出比は大きくなる。
- (2) 見掛けの分配係数 K_d' は、 ^{60}Co , ^{137}Cs の双方とも酸性で大きく、中性およびアルカリ性で小さい。充填砂層と等量の流下液量 2,000 ml での K_d' の値はそれぞれ以下のごとくであった。
- $$^{60}\text{Co}: 2.1 \times 10^3 (\text{pH}7), 2.8 \times 10^3 (\text{pH}12)$$
- $$^{137}\text{Cs}: 1.5 \times 10^3 (\text{pH}7), 1.8 \times 10^3 (\text{pH}12)$$
- (3) 放射性核種の砂層中分布比は、 ^{60}Co , ^{137}Cs のいずれも酸性度にかかわらず砂層表面付近に多くが吸着し、砂層深部に行くに従ってそれらの分布比は減少する。中性、アルカリ性における ^{137}Cs の分布比の減少は指数関数的に急激で、 ^{60}Co のそれはずっとおだやかである。酸性においては、 ^{60}Co , ^{137}Cs とも砂層の中途の深さの所に分布比の一つの極大値を生じた。(ただし、流下液量 2,000 ml の場合)。
- (4) 井上らの通気層中放射性核種の移動式により、 ^{60}Co および ^{137}Cs の砂層中移動速度を求めた。酸性では ^{60}Co , ^{137}Cs とも移動速度は小さいが、それに比べて中性およびアルカリ性では大きい。しかし、水の移動速度に比べては小さく、 ^{60}Co で約 $1/100$, ^{137}Cs で約 $1/10,000$ に過ぎなかった。

謝 辞

本報告の終わりにあたり、多くの便宜を与えて下さった環境安全研究部天野恕部長および荒木邦夫室長に感謝するとともに、実験に参加して下さい下さった北海道大学工学部鍋島正宏氏ならびに放射能測定に協力して下さい下さった保健物理部線量計測課の方々に感謝する。

参 考 文 献

- 1) 井上頼輝, 森沢真輔, 日本原子力学会誌, 14, 522 (1972)。
- 2) M.Pourbix, "Atlas of electrochemical equilibria in aqueous solution", Pergamon press (1966).
- 3) R.K.Schulz, "Soil chemistry of radionuclides", Health phys., 11, 1317 (1965).
- 4) S.W.Mayer and E.R.Tompkins, J. Amer. Chem. Soc., 69 2866 (1947).
- 5) Y.Inoue, W.J.Kaufman, Health phys., 9, 705 (1963).

Table 1 Distribution of particle size of sand

Size (μ)	Weight (g)	Weight percent (wt%)	Frequency factor (wt% / ΔD)
1680 beyond	2.5	0.3	
1680 ~ 1000	52.5	5.2	0.77×10^{-2}
1000 ~ 840	62.7	6.3	3.94×10^{-2}
840 ~ 710	83.4	8.3	6.39×10^{-2}
710 ~ 420	193.5	19.3	6.66×10^{-2}
420 ~ 350	243.0	24.3	3.47×10^{-1}
350 ~ 250	232.9	23.3	2.33×10^{-1}
250 ~ 177	88.1	8.8	1.21×10^{-1}
177 under	41.9	4.2	
Total		100.0	

Table 2 Migration rate of radionuclides in the sand layer (room temp.)

No.	Radionuclide	pH	Kd' (ml/g)	Migration rate (cm/min)
1	$^{60}\text{CoCl}_2$	3.0	2.70×10^5	6.29×10^{-7}
2	$^{60}\text{CoCl}_2$	7.0	2.10×10^1	7.99×10^{-3}
3	$^{60}\text{CoCl}_2$	12.0	2.80×10^1	6.07×10^{-3}
4	$^{137}\text{CsCl}$	3.0	*	*
5	$^{137}\text{CsCl}$	7.0	1.50×10^3	1.13×10^{-4}
6	$^{137}\text{CsCl}$	12.0	1.80×10^3	9.44×10^{-5}

* not available

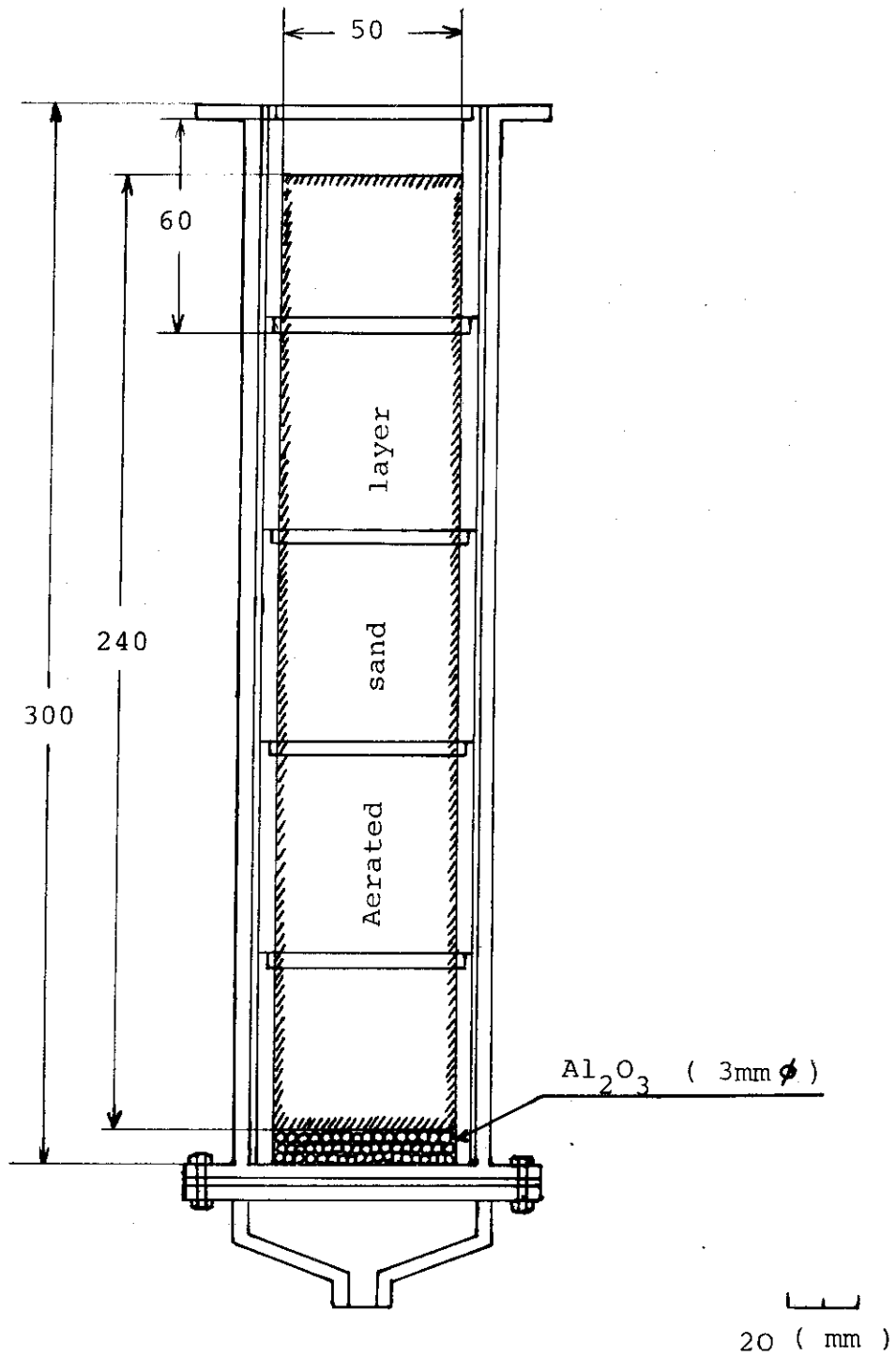


Fig. 1 A scheme of column

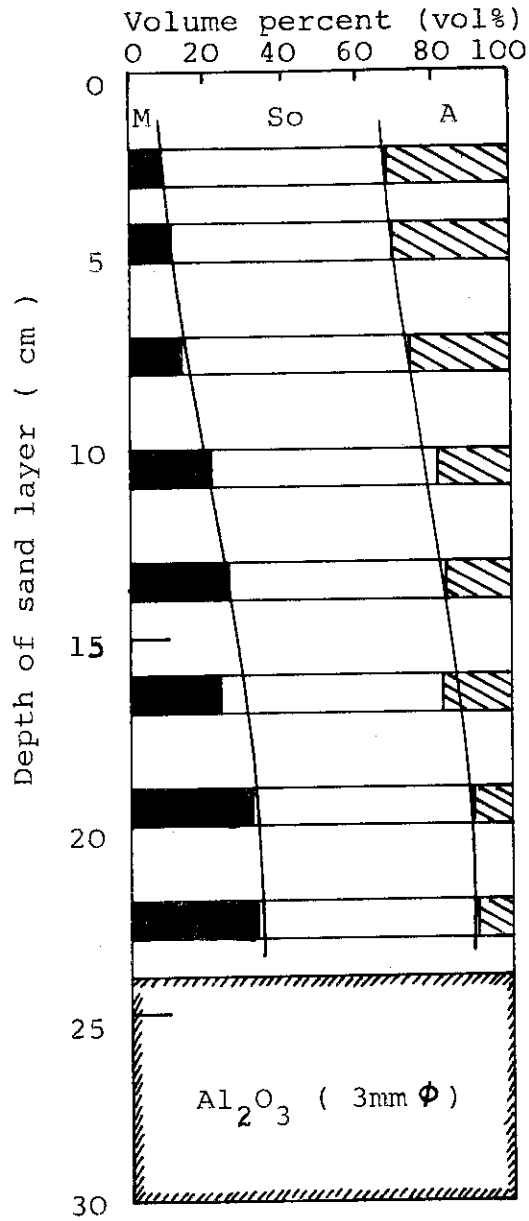


Fig. 2 Water retention ratio and porosity of stratum in the sand layer (room temp.)

M: Water retention ratio (vol%)

So: Solid ratio (vol%)

A: Porosity of stratum (vol%)

f: Overall porosity of stratum

$$f = 0.374$$

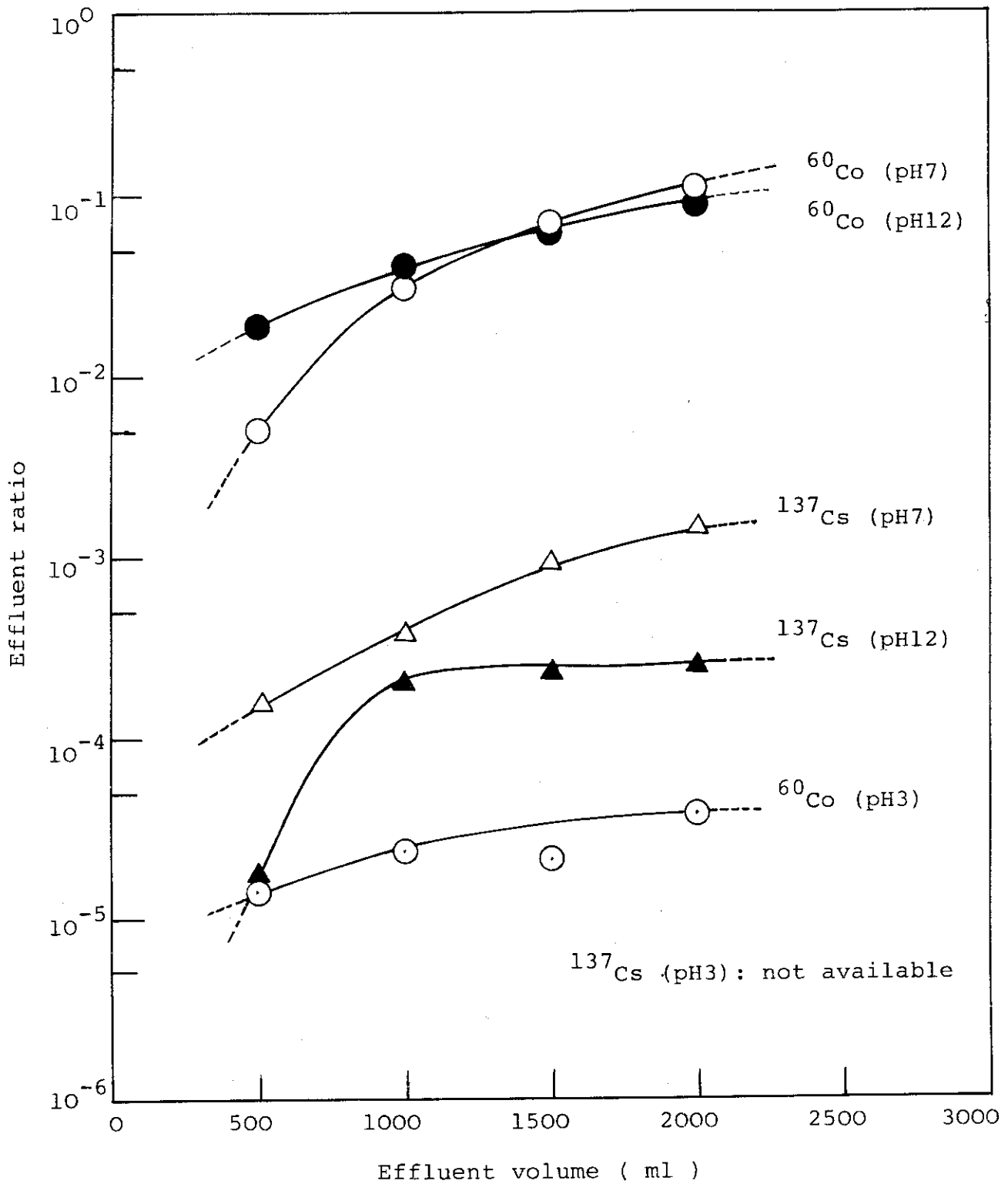


Fig. 3 Dependence of effluent ratio on pH and effluent volume (room temp.).

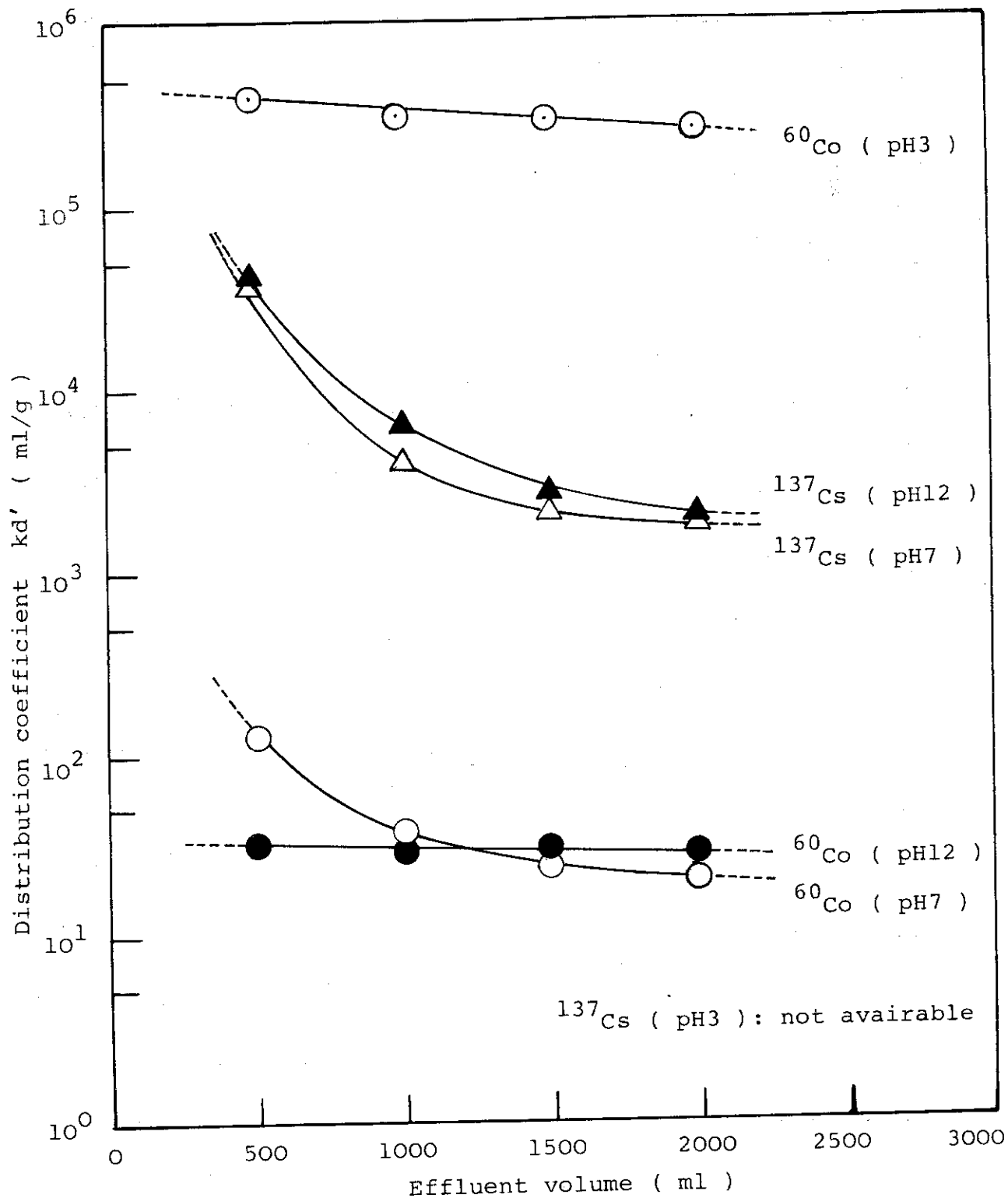


Fig. 4 Dependence of distribution coefficient on pH and effluent volume (room temp.).

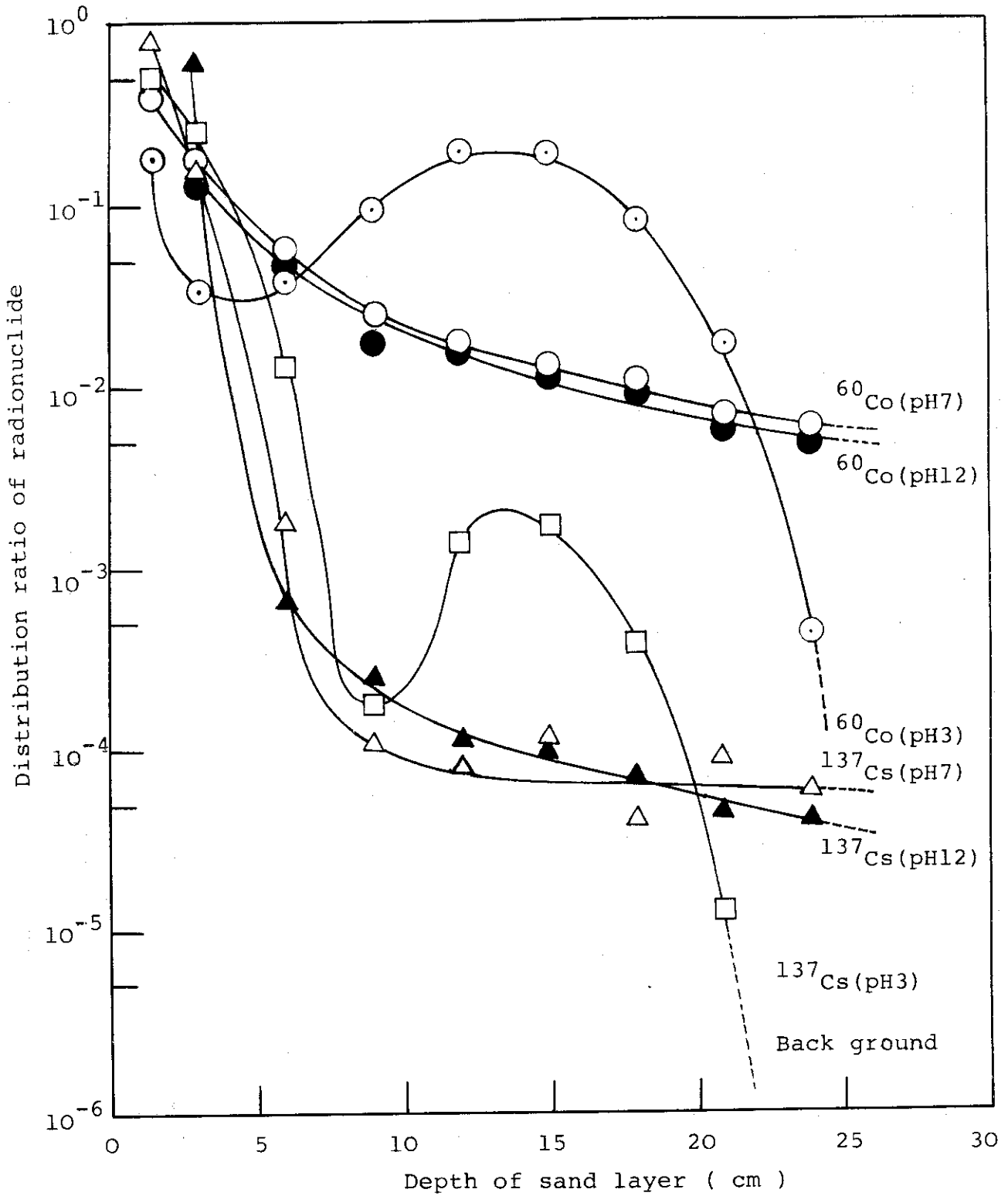


Fig. 5 Distribution ratio of ^{60}Co and ^{137}Cs in the sand layer (room temp.).

Degree of saturation, S (vol%)

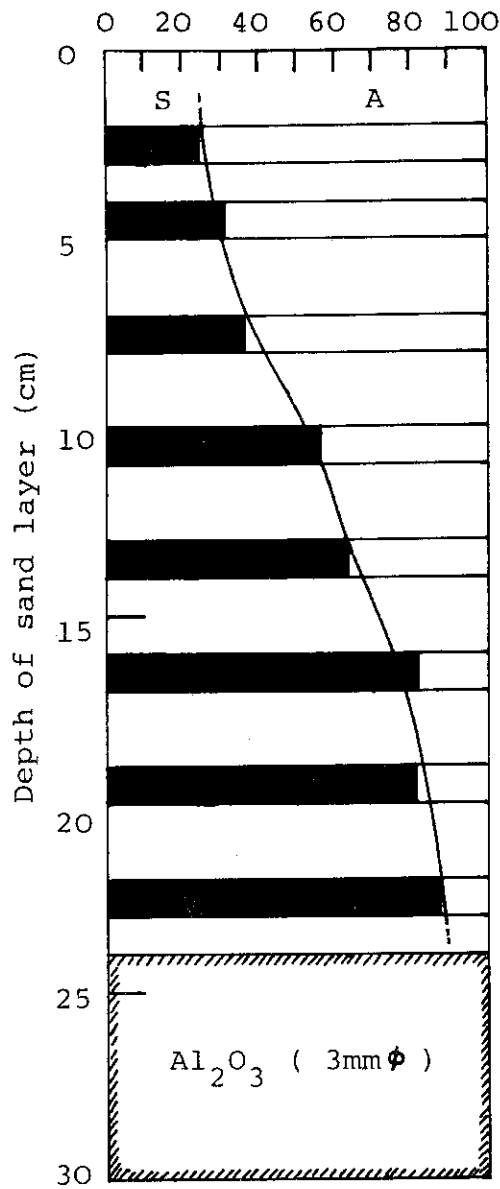


Fig. 6 Porosity of stratum and degree of saturation in the sand layer (room temp.)

$$S = (M / A) \times 100$$

S: Degree of saturation (vol%)

M: Water retention ratio (vol%)

A: Porosity of stratum (vol%)

\bar{S} : Degree of saturation average

in the column (vol%), $\bar{S} = 56.62$